

APLIKASI METODA ELEKTRODIALISIS UNTUK PEMISAHAN URANIUM DARI EFLUEN PROSES

Ghaib Widodo, Hendro Wahyono, Ratih Langenati dan Sigit

Pusat Teknologi Bahan Bakar Nuklir (PTBN) – BATAN

Kawasan Puspipetek Serpong, Tangerang 15314

Email : hendrowo@yahoo.com

ABSTRAK

APLIKASI METODA ELEKTRODIALISIS UNTUK PEMISAHAN URANIUM DARI EFLUEN PROSES. Telah dipelajari aplikasi metoda elektrodialisis guna memisahkan uranium dari efluen proses dengan metoda elektrodialisis bertujuan untuk memisahkan uranium dari efluen proses. Bahan (umpan) yang digunakan adalah campuran efluen proses dengan kode LE-2, LE-6, LE-7, LE-8 dan LE-9 yang berasal dari Instalasi Elemen Bakar Eksperimental – Pusat Teknologi Bahan Bakar Nuklir (IEBE-PTBN). Sel elektrodialisis terdiri dari 3 ruang yaitu ruang anoda, ruang umpan dan ruang katoda. Umpan dimasukkan ke dalam ruang umpan, asam nitrat dimasukkan ke dalam ruang anoda dan katoda. Anoda dan katoda dari Pt dipasang masing-masing di ruang anoda dan katoda. Membran tukar anion (MTA) ditempatkan antara ruang anoda dan ruang umpan, membran tukar kation (MTK) antara ruang umpan dan ruang katoda. Proses elektrodialisis dilaksanakan pada berbagai tegangan dan waktu sampai 300 menit. Setiap 60 menit dilakukan pencuplikan di ketiga ruang tersebut untuk menganalisis uranium dan keasaman. Hasil percobaan menunjukkan bahwa metode elektrodialisis yang terdiri dari tiga ruang telah diperoleh hasil penurunan kadar uranium dalam efluen proses di mana ion uranil ditarik ke ruang katoda melewati membran tukar kation (MTK), yang ditandai dengan berkurangnya kadar uranium dalam ruang umpan dan bertambahnya kadar uranium di ruang katoda. Demikian juga ion-ion negatif dalam umpan efluen proses telah dapat ditarik oleh anoda melewati membran tukar anion (MTA), yang ditandai dengan naiknya keasaman larutan. Tegangan dan waktu elektrodialisis berpengaruh terhadap penurunan kadar uranium dalam efluen. Penurunan konsentrasi terbesar untuk umpan efluen proses terjadi pada tegangan 7 Volt, waktu 240 menit yaitu sebesar 37,13%, keasaman larutan di ruang anoda 0,67N.

Kata kunci: Elektrodialisis, efluen proses, pemisahan uranium, keasaman umpan

ABSTRACT

APPLICATION OF ELECTRODIALYSIS METHOD FOR URANIUM SEPARATION FROM EFFLUENT PROCESS. It has been carried out an electrodialysis method to separate uranium from effluent process. Feed used was mixture of effluent process coded LE-2, LE-6, LE-7, LE-8 dan LE-9 came from Experimental Fuel Element Installation – Center for Nuclear Fuel Technology. Electrodialysis cell consists of anode, feed and cathode segment. Anode and cathode made from platinum was placed in anode and cathode segment respectively. Anion exchange membrane (MTA) was placed between anode and feed segment, while cation exchange membrane (MTK) between feed and cathode segment. Electrodialysis process took place on various voltage and time.

Sampling in the three segments was carried out every 60 minutes to determine uranium concentration and acidity. The results showed that electrodialysis method of three segments gave decreasing of uranium concentration in the effluent process where uranyl ions were pulled to cathode segment passing cation exchange membrane which marked by decreasing of uranium concentration in the feed segment and increasing it in cathode segment. Negative ions in the feed were also pulled by anode passing anion exchange membrane marked by increasing of solution acidity. Voltage and electrodialysis time influenced to the decreasing of uranium in the effluent. The uranium concentration decreasing maximum was 37.13%, acidity of solution in anode segment was 0.67N which took place on the voltage 7 Volt, time 240 minutes.

Key Words: Electrodialysis, effluent process, uranium separation.

PENDAHULUAN

Metode elektrodialisis dengan menggunakan membran organik merupakan salah satu teknik elektrokimia. Teknik elektrodialisis tersebut semula ditujukan untuk penyediaan air minum di daerah tandus dan pedalaman, dengan cara memungut air bersih dari air laut atau air tanah yang asin. Proses tersebut dikembangkan terus-menerus untuk penyediaan air lunak (*water treatment*) untuk keperluan industri dan pemekatan air laut untuk memproduksi garam^[1,2,3]. Selanjutnya elektrodialisis dikembangkan dalam berbagai industri.

Elektrodialisis dalam industri nuklir diperkenalkan pertama kali oleh Higgins dkk^[4], guna mereduksi U(VI) menjadi U(IV) untuk mendapatkan UF₄ dalam keadaan murni dengan menggunakan membran berisi resin tukar kation^[5,6]. Proses tersebut dikembangkan secara terus menerus untuk mendapatkan larutan urano nitrat dari uranyl nitrat mengandung hidrazin yang digunakan dalam proses partisi U dan Pu dalam proses PUREX, sehingga Pu (IV) direduksi menjadi Pu (III) yang tetap berada dalam fase air, sedangkan U (VI) tetap berada dalam fase organik (TBP 30%/70% kerosin)^[7,8]. Kendali valensi terhadap uranium adalah faktor dominan dalam proses. Zat pereduksi biasanya digunakan ferro sulfamat, hidroksilamin nitrat, hydrogen dengan katalis, dan urano nitrat yang dilengkapi dengan hidrazin. Urano nitrat dipilih karena tidak memberikan kontribusi ion

yang korosif dan tidak meningkatkan kandungan garam dalam rafinat dibandingkan pereduksi lainnya. Saat ini, urano nitrat diproduksi secara kimia, fotokimia, atau elektrokimia. Metoda elektrokimia atau elektrodialisis lebih banyak dipakai, karena lebih sederhana dan urano nitrat dapat diproduksi besar-besaran^[7].

Instalasi Elemen Bakar Eksperimental (IEBE) – Pusat Teknologi Bahan Bakar Nuklir (PTBN), sebagai salah satu instalasi proses produksi bahan bakar Nuklir, dalam kegiatan litbangnya telah menghasilkan efluen proses yang berasal dari proses pengendapan, analisis dan lain-lain yang semuanya dijadikan satu dalam satu wadah. Selama ini, pemungutan uranium dalam efluen proses dilakukan dengan menggunakan teknologi pengendapan melalui jalur AUK (ammonium uranyl karbonat), ADU (ammonium diuranat), dan penggunaan peroksida. Untuk menjadi bahan bakar, baik ADU maupun AUK masih memerlukan proses lanjut misalnya kalsinasi dan atau reduksi. Teknologi pengendapan hanya mampu mengendapkan uranium hingga 95%^[8], sedangkan ekstraksi dapat memungut uranium sekitar 80%^[9]. Sebagai akibatnya, masih ada uranium yang tidak sempat mengendap atau terekstraksi dalam efluen proses.

Pemanfaatan elektrodialisis untuk mengurangi anion-anion dan pemisahan kation-kation tertentu dalam larutan murni telah dilakukan dan berhasil baik dalam skala

laboratorium^[10]. Keberhasilan ini dilanjutkan dengan penelitian pemisahan uranium dari umpan uranil nitrat di mana ion uranil nitrat telah dapat ditarik oleh katoda melalui membran tukar kation (MTK)^[11]. Keunggulan teknik elektrodialisis dibandingkan dengan metode lain diantaranya : prosesnya lebih pendek, hasil lebih murni, tidak banyak menggunakan reagen kimia, lingkungan lebih bersih, keselamatan lebih handal.

Sel elektrodialisis dibuat dari bahan *flexi glass* terdiri dari tiga ruang yaitu ruang anoda, ruang tengah (ruang umpan) dan ruang katoda. Diantara ruang dibatasi dengan membran tukar ion. Pada ruang anoda dibatasi dengan membran tukar anion/MTA, pada ruang katoda dibatasi dengan membran tukar kation/MTK.

Efluen proses mengandung uranium sebagai ion uranil (UO_2^{2+}) bermuatan positif dan ion-ion asam (PO_4^{3-} , NO_3^- , dan SO_4^{2-}) diletakkan dalam ruang umpan. Kadar uranium dalam umpan dan ruang katoda dianalisis secara potensiometrik menggunakan alat titroprosesor, sedangkan keasaman pada ruang anoda dianalisis secara titrasi. Penelitian ini diharapkan dapat dilakukan pemisahan uranium dari ruang umpan dan dipindahkan ke ruang katoda karena ion uranil ditarik oleh katoda, dan ion asam ditarik ke ruang anoda.

TATA KERJA

1. Bahan

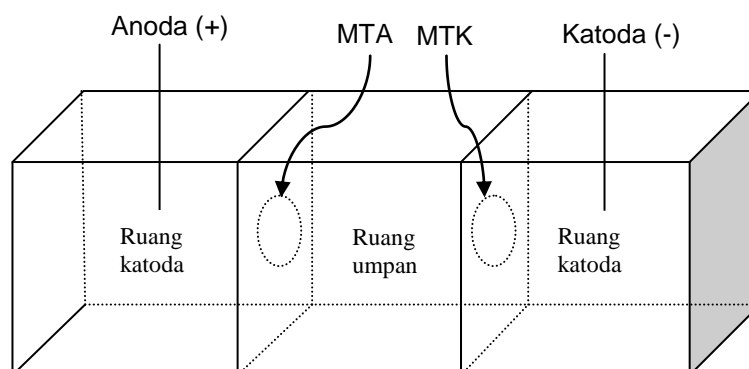
Umpan/sampel yang digunakan dalam penelitian ini adalah efluen proses yang mengandung uranium (uranil nitrat) dan asam.

Bahan tersebut diperoleh dari Instalasi Elemen Bakar Eksperimental (IEBE), PTBN BATAN yang merupakan campuran efluen proses dengan kode LE-2 (Limbah Ekuivalen-2), LE-6, LE-7, LE-8 dan LE-9. Bahan lain yang digunakan untuk analisis adalah asam sulfamat, asam fosfat, fero sulfat, asam nitrat, amonium molibdat, vanadium sulfat, indikator redoks dan kalium bikromat.

2. Peralatan

Satu unit sel elektrodialisis terbuat dari bahan *flexi glass* berbentuk kotak segi empat terdiri dari tiga ruang (bagian) yaitu ruang anoda, ruang umpan (tengah) dan ruang katoda, *dc power supply* model PR 680, elektrode platina (Pt), kawat penjepit dan penggantung elektrode, satu unit alat titroprosesor dan peralatan gelas. Unit rangkaian sel elektrodialisis dapat dilihat pada Gambar 1. Masing-masing ruang dibatasi dengan MTA (Membran Tukar anion) dan MTK (membran Tukar Kation) ber ukuran :

- Ruang anoda : panjang 9,97 cm, tinggi 9,40 cm, lebar 4,73 cm.
- Ruang umpan : panjang 9,97 cm, tinggi 9,40 cm, lebar 4,96 cm.
- Ruang katoda : panjang 9,97 cm, tinggi 9,40 cm, lebar 4,85 cm.
- Diameter lubang membran tukar anion 5,25 cm, membran tukar kation 5,4 cm
- Jarak dasar terhadap lingkaran bawah membran 1,25 cm.
- Jarak bibir kolom terhadap lingkaran atas 2,8 cm.
- Jarak antara anoda-MTA-MTK-katoda adalah : 2,5; +5; dan +2,5 cm.



Gambar 1. Skema alat elektrodialisis terdiri dari tiga ruang

Cara Kerja

Efluen proses dari IEBE dengan kode LE-2, LE-6, LE-7, LE-8 dan LE-9 dicampur dalam suatu wadah hingga homogen lalu dianalisis kandungan uranium dan keasamannya. Kurang lebih 400 mL larutan tersebut diambil dan dimasukkan ke dalam ruang umpan, sedangkan ke dalam ruang anoda dan ruang katoda dimasukkan asam nitrat encer. Pada ruang anoda dipasang anoda Pt dan pada ruang katoda dipasang katoda Pt yang dihubungkan dengan *dc power supply*. Setelah power dihidupkan, arus dialirkan sehingga terjadi proses elektrodialisis. Setiap 60 menit dilakukan pencuplikan pada ruang umpan untuk mengetahui konsentrasi uranium, pada ruang anoda untuk menganalisis keasaman dan pada ruang katoda untuk menentukan konsentrasi uranium.

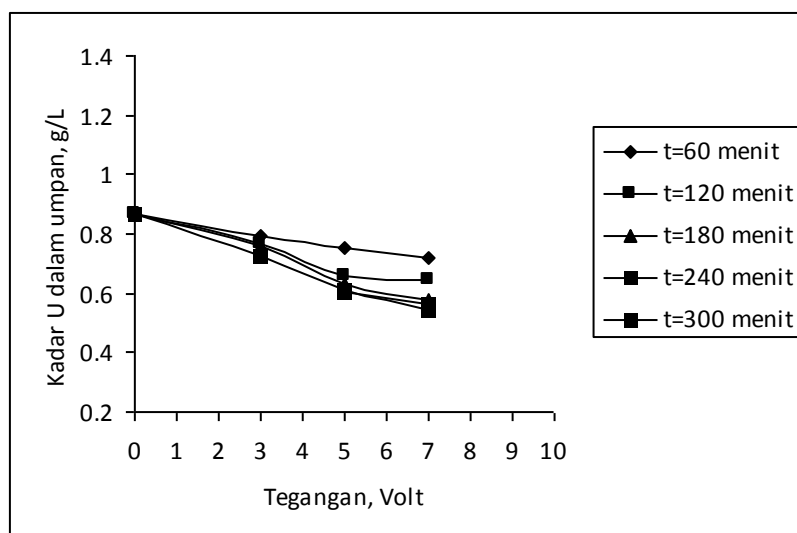
HASIL DAN PEMBAHASAN

Setelah diperoleh hasil percobaan dengan menggunakan umpan uranil nitrat sehingga diketahui kondisi proses elektrodialisis^[10], maka untuk menangani efluen proses mengandung uranil nitrat, dilakukan dengan metode yang sama dengan uranil nitrat yaitu elektrodialisis tiga ruang pada kondisi yang telah diketahui. Efluen

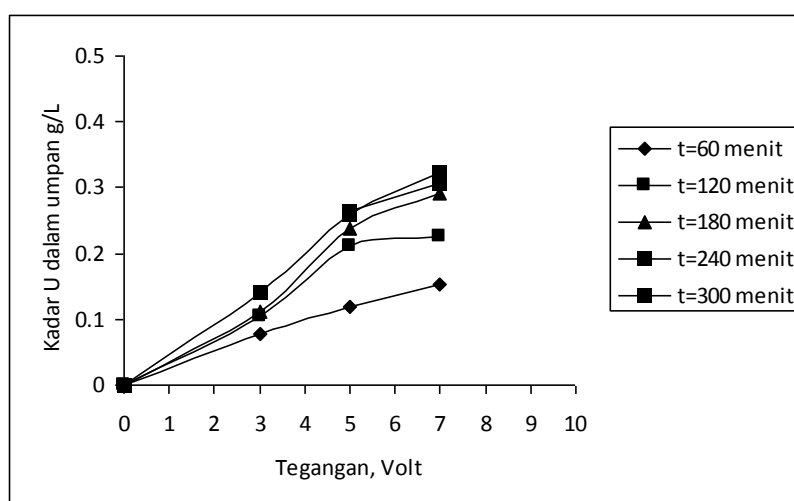
proses yang digunakan sebagai umpan diperoleh dari 5 jenis efluen yang ada di IEBE yang dicampur menjadi satu. Umpan efluen proses yang digunakan mempunyai keasaman (normalitas dengan adanya ion-ion PO_4^{3-} , NO_3^- , dan SO_4^{2-}) 2,44N, kadar Uranium 0,870 g/L, unsur pengotor sesuai dengan jenis efluen adalah Cr, K, Na, Mo, dan Vd serta ion negatif PO_4^{3-} , NO_3^- , dan SO_4^{2-} . Tegangan yang digunakan 3, 5 dan 7 Volt, dengan waktu elektrodialisis 60 menit sampai 300 menit atau 5 jam. Umpan diletakkan di ruang umpan, jarak anode-membran dan katode-membran masing-masing 2,5 cm, ruang anoda dan ruang katoda berisi asam nitrat 0,125N. Selama proses elektrodialisis berlangsung, dilakukan pencuplikan larutan uranil nitrat pada ruang umpan dan ruang katoda setiap 60 menit untuk menentukan kadar uraniumnya, dan pada ruang anoda guna menentukan keasamannya. Hasil percobaan menunjukkan pengaruh tegangan terhadap perubahan kadar uranium dalam umpan efluen proses yang dapat dilihat pada Gambar 2 dan Tabel 1-3 (lampiran). Pada Gambar 2 tampak bahwa pada tegangan yang rendah, penurunan kadar uranium dalam ruang umpan juga rendah. Namun setelah tegangan dinaikkan, terjadi penurunan kadar uranium dalam ruang umpan yang makin besar. Sebaliknya jika kadar U dalam ruang umpan mengalami penurunan, maka kadar U dalam ruang katoda mengalami

kenaikan (Gambar 3). Hal ini menandakan bahwa telah terjadi perpindahan ion uranium yang bermuatan positif dari ruang umpan ke ruang katoda. Dengan demikian telah terjadi pemisahan uranium dari efluen proses yang ditandai dengan penurunan konsentrasi uraniumnya, atau dengan perkataan lain, metoda elektrodialisis ini telah berhasil dan

dapat digunakan untuk pemisahan uranium dari efluen proses atau limbah nuklir cair yang mengandung uranium. Penurunan kadar uranium dalam umpan terbesar terjadi pada tegangan 7 Volt, waktu 300 menit yaitu sebesar 37,13%, sedangkan konsentrasi uranium dalam ruang katoda 0,305 g/L.



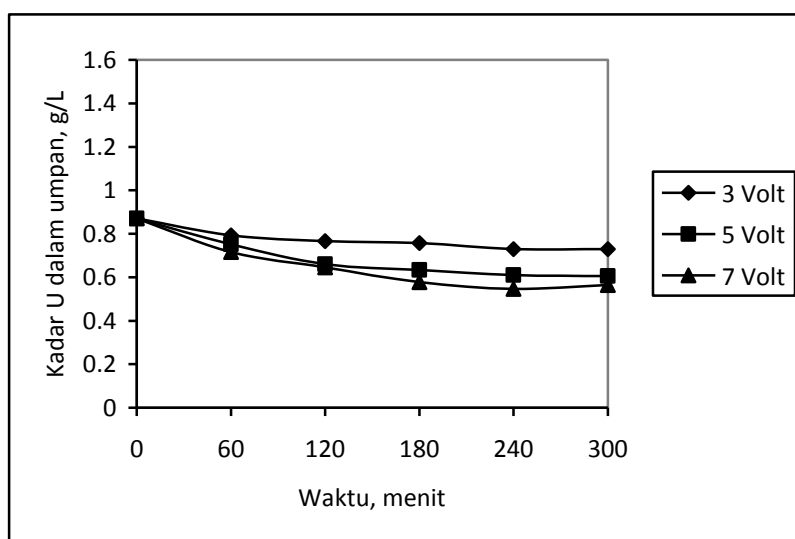
Gambar 2. Hubungan antara besarnya tegangan dengan kadar U dalam umpan efluen proses pada berbagai waktu elektrodialisis



Gambar 3. Hubungan antara besarnya tegangan dengan kadar U dalam ruang katoda pada berbagai waktu elektrodialisis

Hasil percobaan elektrodialisis dengan parameter waktu dapat dilihat pada Gambar 4 dan Tabel 1-3 (lampiran), di mana pada saat proses elektrodialisis berlangsung, kadar U dalam ruang umpan makin berkurang atau terjadi penurunan konsentrasi U, sebaliknya dalam ruang katoda terjadi kenaikan konsentrasi U seiring dengan berjalannya waktu elektrodialisis. Semakin lama waktu elektrodialisis berlangsung, konsentrasi

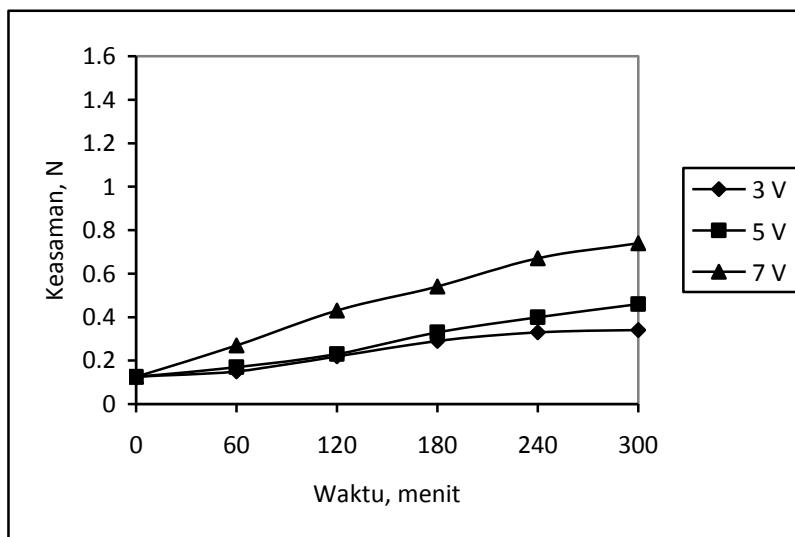
uranium dalam ruang umpan semakin berkurang, sebaliknya pada ruang katoda makin bertambah besar. Untuk tegangan yang rendah (3 Volt) penurunan kadar uranium dalam efluen proses di ruang umpan hanya sedikit, hal ini dimungkinkan karena arus yang keluar juga kecil sehingga daya tarik katoda terhadap ion uranium juga kecil, sedangkan pada tegangan yang lebih tinggi (5 dan 7 Volt) penurunannya cukup besar.



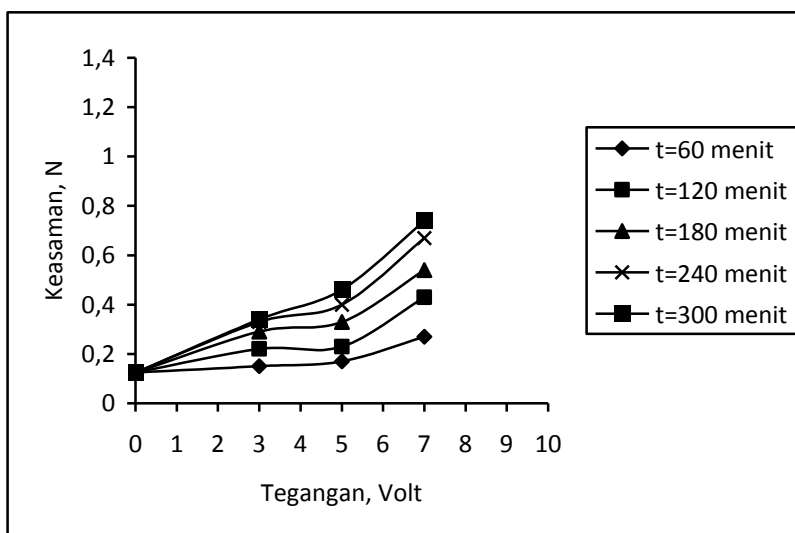
Gambar 4. Hubungan antara waktu elektrodialisis dengan kadar U dalam umpan efluen proses pada berbagai tegangan

Pada elektrodialisis dengan umpan efluen proses juga diamati keasaman (normalitas dengan adanya ion-ion PO_4^{3-} , NO_3^- , SO_4^{2-}) larutan pada ruang anoda di mana terdapat anoda bermuatan positif, sedangkan pada bilik umpan terdapat ion bermuatan negatif yaitu PO_4^{3-} , NO_3^- , dan SO_4^{2-} . Oleh karena itu ion-ion negatif ditarik oleh anoda melewati membran tukar anion. Hasil percobaan dapat dilihat pada Gambar 5-6 dan

Tabel 1-3 (lampiran). Semakin tinggi tegangan yang dipakai, semakin bertambah pula keasaman di ruang anoda. Demikian pula semakin lama waktu elektrodialisis, keasaman di ruang anoda bertambah. Hal ini disebabkan oleh bahwa ion-ion negatif dalam ruang tengah (umpan) tertarik oleh anoda yang berada di ruang anoda. Ion-ion negatif tersebut bergerak melewati membran tukar anion (MTA).



Gambar 6. Hubungan antara waktu dan keasaman larutan dalam ruang anoda pada berbagai tegangan.



Gambar 5. Hubungan antara tegangan dan keasaman larutan dalam ruang anoda pada berbagai tegangan

Jika dibandingkan penggunaan umpan yang berupa uranil nitrat^[10] dan efluen proses untuk kondisi yang sama, penggunaan umpan uranil nitrat memberikan hasil yang lebih baik daripada umpan efluen proses ditinjau dari besarnya penurunan kadar uranium. Hal ini dapat dimaklumi karena uranil nitrat yang digunakan relatif bersih dari unsur pengotor, sedangkan efluen mengandung banyak unsur pengotor dan senyawa asam yang beraneka macam. Unsur pengotor kation (yang diduga V, K, Na, Cr, Fe, Mo) saling berkompetisi

menerobos membran tukar kation, sehingga ion uranium yang berukuran besar terganggu.

SIMPULAN

Dari percobaan elektrodialisis tiga ruang dengan umpan efluen proses telah diperoleh hasil penurunan kadar uranium dalam efluen proses di mana ion uranil (bermuatan positif) dapat bergerak ke ruang katoda (bermuatan negatif) melewati membran

tukar kation (MTK), yang ditandai dengan berkurangnya kadar uranium dalam ruang umpan dan bertambahnya kadar uranium di ruang katoda. Demikian juga ion-ion negatif

dalam umpan efluen proses (PO_4^{3-} , NO_3^- , dan SO_4^{2-}) telah dapat ditarik oleh anoda melewati membran tukar anion (MTA), yang ditandai dengan naiknya keasaman larutan. Tegangan dan waktu elektrodialisis berpengaruh terhadap penurunan kadar uranium dalam umpan efluen proses. Penurunan konsentrasi terbesar untuk umpan efluen proses terjadi pada tegangan 7 Volt, waktu 240 menit yaitu sebesar 37,13% dan keasaman di ruang anoda 0,67N. Sebagian dari sekian efluen proses yang ada di IEBC telah dapat diturunkan kadar uraniumnya dengan metode elektrodialisis tiga ruang ini.

SARAN

Untuk memperbesar penurunan kadar tersebut, penelitian dapat dilanjutkan dengan menggunakan umpan uranium(IV) yang dibuat dengan cara reduksi elektrolitik terlebih dulu, dengan harapan akan diperoleh hasil penurunan kadar uranium yang lebih besar, mengingat ukuran ion uranium(IV) lebih kecil daripada ion uranium(VI), sehingga kemungkinan menerobos membran tukar kation lebih besar.

UCAPAN TERIMA KASIH

Penulis mengucapkan terimakasih kepada Staf yang telah membantu penelitian ini yaitu Saudara/i: Dr. Ir. Fathurrachman, M.Sc., Deni Mustika, S.Si, Mujinem, A.Md, Torowati, ST, Noor Yudhi, A.Md., Pranjono, BE, Banawa Sri Galuh, A.Md, Lilis Windaryati, Mahpudin, Eri Tri Muntiyatno, S.Si, dan Effendi.

DAFTAR PUSTAKA

1. Electrodialysis, A Method to deionize water and to recover the salt, <http://www.pca-gmbh.com/appli/ied.htm>
2. Electrodialysis, Membrane Technology, <http://www.lenntech.com/electrodialysis.htm>
3. RAUTENBACH, R. and ALBRECHT, R. "Membrane Processes", John Wiley and Sons, Chichester, (1989), p. 334
4. HIGGINS, R.J. atc : "Process and System for Production of Inorganic Nanoparticles", United States Patent US5879-715, Wayland, Mar. 9, 1999
5. MASON, E.A. and PARSI, E.J. "Applications of Ion Transfer Membranes in Nuclear Chemical Processing", Proceedings of the Second United Nations International Conference on the Peaceful Uses of atomic Energy, Geneva
6. Mc. RAE, W.A, "Electro-separations (Electrodialysis)", Encyclopedia of Chemical Technology, Kirk-Othmer, 4th edition, Vol. 9, John Wiley & Sons, New York, (1994), p. 344
7. NAIR, M.K.T., SINGH, R.K., BAJPAI, D.D., VENUGOPALAN, A.K., SINGH, R.R., GURBA, P.B., and THOMAS, M., "Role of Ion Transfer Membrane in the Production of Uranous Nitrate", BARC/1992/E/002, Bombay, (1992)
8. AGOENG. K, "Pengendapan Uranium Dari Limbah Menggunakan Beberapa Reagen Endap", Presentasi Hasil Penelitian/Kegiatan 2008, PTBN BATAN, Serpong, 2009
9. PETUNJUK PELAKSANAAN "Proses Olah Ulang Gagal Produk 5F", BT.121 – A01 – BT – 30306 PT BATAN Teknologi, April 2005
10. FATHURRACHMAN dan WAHYONO, H. : "Pembuatan U(IV) dari U(VI) Menggunakan Teknik Elektrodialisis", Presentasi Ilmiah Daur Bahan Bakar Nuklir V, ISSN 1410 – 1998, P2TBDU – BATAN, Jakarta (1999) hal. 193 – 206

11. SIGIT, GHAIB WIDODO, RATIH LANGENATI, TOROWATI, NOOR YUDHI, Pengaruh Tegangan, Waktu Dan

Keasaman Pada Proses Elektrodialisis Larutan Uranil Nitrat, Jurnal Teknologi Bahan Nuklir, Vo. 6, No. 1, Januari 2010

LAMPIRAN

Tabel 1. Hasil proses elektrodialisis untuk efluen proses

Keasaman umpan efluen proses = 2, 44N

Konsentrasi U awal = 0,870 g/L

Tegangan = 3 Volt

Waktu (menit)	Arus, (A)	Ruang anoda, Keasaman HNO ₃ , (N)	Konsentrasi U, (g/L)		Penurunan Konsentrasi U (%)
			Ruang Umpan	Ruang Katoda	
0	0,9	0,125	0,870	0	0
60	0,9	0,35	0,793	0,077	8,85
120	0,8	0,41	0,766	0,104	11,95
180	0,8	0,42	0,758	0,112	12,87
240	0,8	0,45	0,729	0,141	16,21

Catatan: $\%[U] = \frac{([U] \text{ bilik katoda})}{[U] \text{ awal}} \times 100 \%$

Tabel 2. Hasil proses elektrodialisis untuk efluen proses

Keasaman umpan efluen proses = 2, 44N

Konsentrasi U awal = 0,870 g/L

Tegangan = 5 Volt

Waktu, (menit)	Arus, (A)	Ruang anoda, Keasaman HNO ₃ , (N)	Konsentrasi U (g/L)		Penurunan Konsentrasi U (%)
			Ruang Umpan	Ruang Katoda	
0	1,45	0,125	0,870	0	0
60	1,40	0,17	0,751	0,119	13,68
120	1,52	0,23	0,660	0,210	24,14
180	1,50	0,33	0,633	0,237	27,24
240	1,40	0,40	0,610	0,260	29,88
300	1,25	0,46	0,605	0,265	31,46

Tabel 3. Hasil proses elektrodialisis untuk efluen proses

Keasaman umpan efluen proses = 2, 44N

Konsentrasi U awal = 0,870 g/L

Tegangan = 7 Volt

Waktu, (menit)	Arus, (A)	Ruang anoda, Keasaman HNO ₃ , (N)	Konsentrasi U (g/L)		Penurunan Konsentrasi U (%)
			Ruang Umpan	Ruang Katoda	
0	2,20	0,125	0,870	0	0
60	2,70	0,27	0,716	0,154	17,70
120	2,40	0,43	0,645	0,225	25,86
180	2,40	0,54	0,578	0,292	33,56
240	2,10	0,67	0,547	0,323	37,13
300	1,75	0,74	0,565	0,305	35,06